大面积重离子微孔膜离子辐照均匀性模拟研究

肖明皓[1,2,3]，王文涛[1,2,3]，李运杰[1,2,3]，薛海舟[1,2,3,†]

1. 中国科学院近代物理研究所材料研究中心，甘肃 兰州 730000；
2. 中国科学院大学核科学与技术学院，北京 100049；
3. 先进能源科学与技术广东省实验室，广东 惠州 516000

摘要: 重离子辐照在半导体、医疗、材料和生物等多个领域有着广泛应用，而辐照的均匀性则是相关应用的关键指标，例如重离子微孔膜，其微孔分布的均匀性直接由离子辐照决定。重离子微孔膜具备孔径、孔密度可控和孔道笔直等优良特性，具有良好的应用前景。目前，可以快速辐照大面积重离子微孔膜的兰州重离子加速器 TR-3 终端已在建设，其通过连续传动宽幅薄膜的同时进行辐照以实现高效率的连续生产。而对于宽幅、连续运动的薄膜，如何保障离子辐照的均匀性成为了亟需研究的问题。本文开发了基于路径积分的模拟程序以计算重离子微孔膜的辐照注量分布。结果表明，二维扫描匀速传动辐照存在一系列离散的耦合速度使辐照结果达到均匀，偏离耦合速度将导致注量分布周期性起伏；一维扫描对非理想束斑形状的适应性更高，而二维扫描对束流强度跳变的适应性更高。当注量误差上限和提供的束流强度确定时，可通过本文提供的公式计算传动辐照所需的耦合传动速度并给出使用一维扫描或二维扫描的建议。本研究模拟重离子辐照均匀性的结果可为相关研究和生产提供参考。

关键词: 重离子微孔膜，离子辐照，辐照均匀度，磁场扫描

中图分类号: O571.53　**文献标志码:** A　**doi:**

1 引言

离子辐照在半导体[1]、能源[2]、医疗[3]、生物[4]和材料研究[5-7]等领域有着广泛应用，而离子辐照的均匀性则是许多应用中的关键指标。例如，半导体加工中的离子注入不均匀将导致元器件成品率降低[1]；在惯性约束聚变（inertial confinement fusion）中，辐照不均匀将导将致聚变能量输出的降低[8]；在辐照治疗肿瘤中，磁扫描的误差以及局部不均匀的剂量分布将导致低剂量区域的肿瘤细胞更容易存活，致使治疗效果下降[9]；在生物和材料的相关研究和应用中也需求均匀的离子辐照 [10]。

收稿日期: 2023-07-18；**修改日期:** 2023-09-19

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(E311171G)，中国科学院人才计划项目(E128171Y)，中国科学院战略性先导科技专项(XDC10020202)

作者简介: 肖明皓(1998—), 男，汉族，湖北省，硕士研究生在读，凝聚态物理专业; E-mail: xiaominghao@impcas.ac.cn.

通信作者: 薛海舟，E-mail: haizhouxue@impcas.ac.cn

在离子辐照的众多应用当中，重离子微孔膜由于其优良的特性在近年来获得了较快的发展。薄膜材料，尤其是聚合物薄膜经由快重离子辐照和后处理，可以产生孔径均匀，孔密度可控，且为严格直孔的微孔，即形成重离子微孔膜。重离子微孔膜在过滤[11]、精密分离[12]、纳米结构生长模板[13]、超材料制备[14,15]等领域均具备良好的应用前景。对于重离子微孔膜而言，其面积、孔径和孔密度是影响性能的主要参数。随着近年来应用领域的不断拓宽，对重离子微孔膜也提出了更高的要求：例如电池隔膜，血液透析膜，离子分离膜[16-18]等，所需的孔径在纳米级甚至亚纳米级；而纳米吸光结构，力学超材料，气体分离膜等，需要的微孔密度达到或超过每平方厘米十亿个 [13]。同时，上述的过滤分离膜和光学材料等，在实际应用中都需要足够大的膜面积以满足器件，如汽车电池、卫星用吸光罩等的需求，尽量避免拼接等会影响性能，添加额外成本的工艺。可见，重离子微孔膜的研究和应用正呈现出注量更高，孔径更小（更精密），有效面积更大的趋势。对于高附加值应用，如精密分离、超高吸光率材料等，严格的微孔分布的均匀性是其必要前提。重离子微孔膜的微孔由离子径迹蚀刻形成，其分布直接取决于辐照中离子的分布，因此辐照均匀性是重离子微孔膜制备中的核心质控指标之一。

在过去的数十年中，已有多种方法被用于提高辐照的均匀性，如扩散法、磁场散焦法、像素法、扫描法等[19-22]。除了扩散法为依靠束斑自然扩散使待辐照区域得到均匀辐照外，其它方法的核心均为使多个束斑（或经过分离的单个束斑）互相叠加形成注量均匀区域。其中，扫描法由于其相对简单的硬件配置，可调的扫描范围和扫描频率等，被广泛运用于重离子辐照中[23-27]。扫描法从扫描路径的特征上可以分为类李萨如图形扫描[28]、螺旋扫描[29]和方波扫描[30]等；从物理原理上可以分为磁扫描[31]和电扫描[32]。由于电扫描需要极高的交变电场，快重离子束的扫描一般采用磁扫描的方式。例如对于能量为 5.97 MeV/u 的 $^{129}Xe^{22+}$离子束，在偏转电场有效长度为 100 mm 时，偏转 1° 需要至少 1.22×10^{7} V/m 的电场强度。而使用长为 100 mm 的偏转磁场时，仅需要约 0.35 T 的磁感应强度，可行性更高。

目前，磁扫描在辐照相对较小且静止不动的样品时效果良好，然而针对新兴材料，比如重离子微孔膜等，仍需要进一步研究以提高其性能。新一代重离子微孔膜辐照设备要求大的膜面积、高注量、高运行效率。例如目前近代物理研究所在建的 TR-3 终端，其有效辐照范围达到 600 mm×300 mm，最高离子注量超过 1×10^{10} ions/cm^2。此外，为提高效率，通过卷绕传动使薄膜连续运动接受辐照。运动的宽幅薄膜需求更宽的扫描幅度和更高的扫描频率，对磁扫描系统提出了更高的要求。而对于连续运动的大面积靶的离子辐照的均匀性问题，目前尚没有系统的研究。由于新的需求的涌现，以及相关设备，特别是重离子微孔膜辐照装置的建设，研究在磁扫描系统的能力存在极限（体积、散热、功率等）的情况下，如何实现大面积薄膜均匀离子辐照是具有重要实际意义的，也是为包括精密重离子微孔膜在内的先进材料的进一步研究和应用提供助力。

为研究宽幅、高速运动的薄膜离子辐照的均匀性问题，本文采用了路径积分方法计算辐照后的注量

分布，即计算膜上的每一个取样点的相对注量。本文将在第二节中简要介绍路径积分计算的模型，第三节给出相应研究结果并进行讨论，第四节是本文总结。

2 计算模型

本文模拟中所采用的磁场扫描方式包括二维扫描和一维扫描。二维扫描指在垂直束流方向并互相垂直的两个方向（以下称 x、y 方向）上施加周期性变化的电磁场，使束斑在一定范围内扫描并覆盖整个待扫描区域；一维扫描指传动辐照中使束斑仅在垂直于传动速度的方向（x）上扫描，利用匀速传动使束斑覆盖整个待辐照区域。对于磁扫描，偏转角度足够小时，束斑落点偏移可近似视为与偏转磁场强度成正比。实际的设备如兰州重离子加速器的 TR-6 终端，其偏转磁铁与靶相距 4200 mm，而辐照薄膜的幅宽为 400 mm，即束斑最大偏转距离略大于 200 mm，偏转角度可以视为足够小。因此，可以将磁场变化量视为与扫描时束斑的坐标偏移成正比。

目前近代物理研究所重离子微孔膜相关辐照终端采用的是三角波扫描。在扫描过程中束斑速率几乎不变，三角波的扫描路径可以视为平行线的叠加，中心区域格点大小相等且分布均匀，有利于保持整体的均匀性。故此，本文也相应设定辐照扫描波形为三角波波形。

三角波扫描波形下，束斑扫描路径的时间参数方程如式(1)、式(2)所示

$$x(t)=\frac{1}{2}A_x-\left|(\frac{1}{2}A_x+2A_xf_xt)\bmod(2A_x)-A_x\right| \tag{1}$$

$$y(t)=\frac{1}{2}A_y-\left|(\frac{1}{2}A_y+2A_yf_yt)\bmod(2A_y)-A_y\right| \tag{2}$$

式中 A_x、A_y 为 x、y 方向上的扫描幅度，f_x、f_y 为扫描频率，t 为扫描时间。由于束斑的二维扫描路径与李萨如图形类似，为由互相垂直的两个方向上两个频率成整数比的周期性运动所合成的规则稳定的闭合曲线，因此称为类李萨如图形。在确定了总扫描时间后，式(1)和式(2)即可给出扫描路径。选取束斑静止不动的参考系，则膜中心点相对于束斑的运动轨迹为相同图形。对于给定的点及其周围区域，则相当于一个强度不断变化的束流在持续辐照。因此，对束斑归一化后，通过积分可以得出中心点注量：

$$Int=\frac{C}{\iint_{\infty}g(x,y)dxdy}\int_0^T g[x(t),y(t)]dt \tag{3}$$

这里 $g(x,y)$为束斑内的强度分布函数，单位为 ions/(s·cm^2)；C 为束流强度，即每秒入射的粒子数，单位为 ions/s；T 为总辐照时间。理想情况下，束斑为高斯分布；最后得到的积分结果 Int 是离子注量，单位为 ions/cm^2。对于非中心点，只需要在束斑分布函数上加上相对于中心点坐标偏移量即可：

$$Int' = \frac{C}{\iint_{\infty} g(x,y)dxdy} \int_0^T g[x(t)+x', y(t)+y']dt \tag{4}$$

本文采用的束斑分布在非特别声明的情况下均为理想高斯分布，其表达式为：

$$g(x,y) = e^{-\frac{\ln 20}{r^2}(x^2+y^2)} \tag{5}$$

r 为束斑的 5%高半径（束斑高度为最大值 5%处的半径），和半高宽接近，在没有特殊说明的情况下均采用 r = 10 mm。由于本文采用的衡量膜上注量均匀性的指标为相对极差，即最大最小值之差与平均值之比，因此式(4)中的常数系数 $\frac{C}{\iint_{\infty} g(x,y)dxdy}$ 可以省略。在本文的模拟中，理想束斑的 5%高半径为 10 mm。若以 mm 为长度单位，则结合式(4)、式(5)，并略去式(4)中的常数系数可得计算时使用的积分式：

$$I(x', y') = \int_0^T e^{-0.03[(x(t)+x')^2+(y(t)+y')^2]}dt \tag{6}$$

本文使用 Matlab 计算式(6)的积分结果，积分步长取为 10 ns。参考实际应用中扫描磁铁的体积、功率、散热等物理和工程限制，f_x、f_y 限制在 200 Hz 及以下。

3　结果与讨论

3.1 静止靶二维扫描辐照

静止靶二维扫描是目前材料辐照的主流方式。三角波扫描的扫描路径由两组平行且等距的线段组成，线段的间距决定束斑是否充分叠加，进而决定扫描的均匀性。在扫描幅度扩大，但束斑尺寸保持不变的情况下，对于较高的扫描频率，注量可以保持均匀，但在较低频率下就会由于扫描路径不够密集而产生周期性的起伏，这也是实现大面积均匀辐照的难点之一。参考光学中两个高斯光斑的分辨极限，若相邻束斑中心的距离大于其半高宽，将在紧挨的多条平行扫描路径之间产生一个明显的注量下降区域，这是周期性的起伏的来源。

根据三角波的性质，对于互质的扫描频率组合，三角波扫描形成的类李萨如图形在一个扫描周期内的路径可以分为两组线段，组内各线段互相平行且等距。平行线间距是扫描频率和扫描幅度的函数，可以分为两种情况：

1. f_x、f_y 互质且均为奇数时：

$$d = \frac{2}{\sqrt{\left(\frac{f_x}{A_y}\right)^2 + \left(\frac{f_y}{A_x}\right)^2}} \tag{7}$$

2. f_x、f_y 互质，一个是奇数另一个是偶数时

$$d=\frac{1}{\sqrt{\left(\frac{f_x}{A_y}\right)^2+\left(\frac{f_y}{A_x}\right)^2}} \tag{8}$$

这里f_x、f_y分别为x、y方向上扫描的频率，A_x、A_y分别为x、y方向上的扫描幅度。当d小于高斯束斑的半高宽时，静止状态下的辐照均匀性便可以得到保证。对于束斑5%高半径为10 mm，扫描面积为600 mm×300 mm的情况，如果f_x、f_y互质且相差不大（$|f_x-f_y|<<f_x+f_y$），那么可以算出两种情况下保持扫描均匀性要求的最小频率：当f_x、f_y互质且均为奇数时，最小需要55 Hz的扫描频率来保障均匀性；当f_x、f_y互质且一个是奇数一个是偶数时，最小需要28 Hz的扫描频率来保障均匀性。如果束斑尺寸进一步缩小，则需要的扫描频率会相应提高。在束斑5%高半径为10 mm的情况下，当f_x、f_y互质且均为奇数时，最小需要110 Hz的扫描频率来保障均匀性；当f_x、f_y互质且一个是奇数一个是偶数时，最小需要56 Hz的扫描频率来保障均匀性。由于实际薄膜辐照过程中很难精确保持束斑的大小，建议采用互质且尽可能高的扫描频率来确保大面积扫描的均匀性。

3.2 匀速传动辐照

使薄膜连续运动是提高辐照效率的有效方法。针对传动辐照，扫描的方式可以分为两种：二维扫描和一维扫描。二维扫描与静止靶情况下类似，一维扫描则是仅在与传动速度垂直的方向进行扫描，依靠薄膜传动使离子径迹分布在整张膜上，其扫描轨迹如图1(a)所示。为了便于分析，我们以薄膜为参考系，扫描区域做匀速运动。以靶的传动方向为y方向，可以给出扫描路径的参数方程：

$$x(t)=\frac{1}{2}A_x-\left|\left(\frac{1}{2}A_x+2A_xf_xt\right)\bmod(2A_x)-A_x\right| \tag{9}$$

$$y(t)=\frac{1}{2}A_y-\left|\left(\frac{1}{2}A_y+2A_yf_yt\right)\bmod(2A_y)-A_y\right|+vt \tag{10}$$

这里v为传动速度。当f_y取为0 Hz时，即为一维扫描；f_x、f_y均不为0时为二维扫描。将式(9)、式(10)代入式(7)或式(8)计算可以得到薄膜传动条件下的辐照模拟结果。在传动条件下，影响辐照均匀性的因素还包括传动速度，故主要讨论扫描频率和传动速度对均匀性的影响。

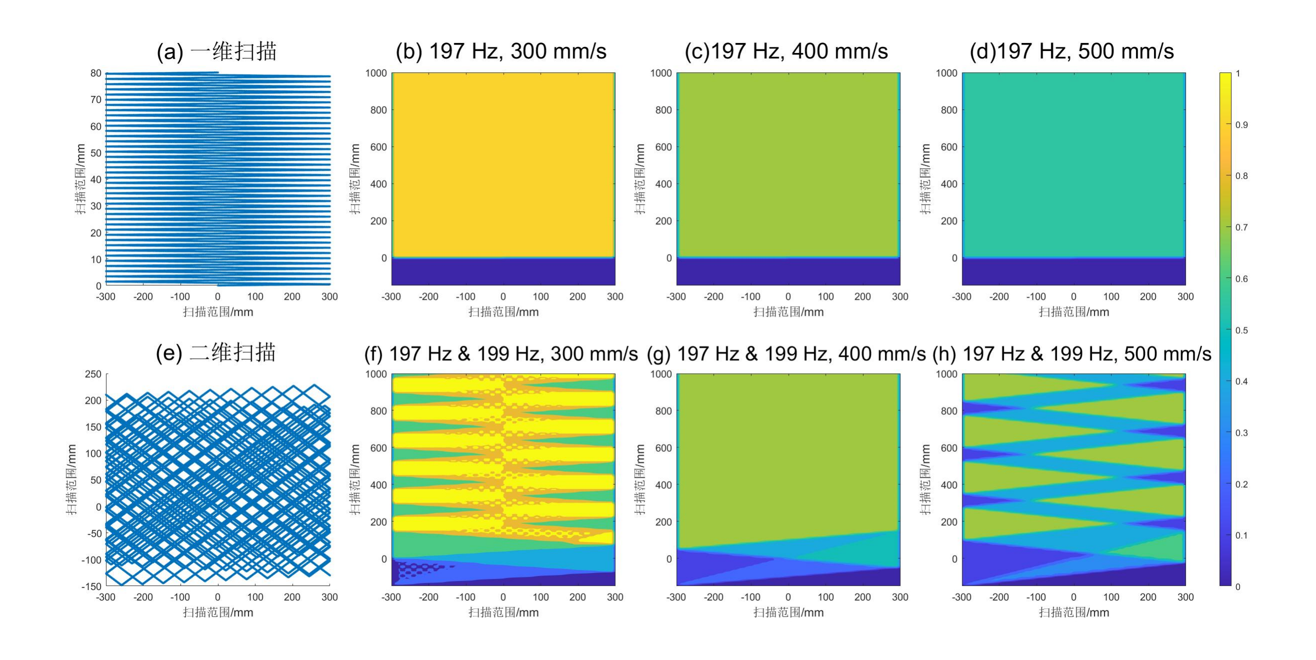


图 1 (a)-(d)一维扫描与(e)-(h)二维扫描路径及注量分布对比

图 1 为一维扫描和二维扫描的路径和模拟注量分布对比：图 1(a)为扫描频率 41 Hz，传动速度 80 mm/s 时一维扫描 1 s 后的路径，图 1(b)-(d)为对于幅宽 600 mm 的薄膜，传动速度分别为 300 mm/s、400 mm/s 和 500 mm/s 时一维扫描的辐照结果；图 1(e)为扫描频率 41 Hz & 43 Hz，传动速度 80 mm/s 时二维扫描传动 1 s 后的路径，图 1(f)-(h)则为不同速度下 x 方向扫描幅度为 600 mm、y 方向扫描幅度为 300 mm 时二维扫描的传动辐照结果。从模拟结果可以看出，对于二维扫描，在 300 mm/s 和 500 mm/s 的传动速度下，模拟辐照结果出明显条纹，仅在 400 mm/s 的传动速度下的模拟辐照结果达到相对均匀分布；而对于一维扫描，由于扫描频率相对传动速度足够高，三个速度条件下模拟辐照结果均可达到相对均匀分布。

二维扫描传动辐照和静止靶辐照相比，相同时长内辐照的面积增大，即整体的扫描路径变得更加稀疏，所需的频率将提高。除了扫描频率外，传动速度对辐照的均匀性也有重大的影响。其中二维扫描传动辐照对速度的要求并非是单纯的低于某个阈值，而是存在着最合适的传动速度使均匀性达到最佳，这里称为耦合速度。这说明传动辐照下，即便扫描频率较高，依然不能忽视传动速度的影响。

在传动辐照下，二维扫描原本的路径将会受到靶运动的影响产生畸变，这种畸变的一个直观的表现就是扫描路径的拐点，即束斑中心在 x 或 y 方向上的位移达到最大值时的位置（扫描电源提供的三角波形的电流达到正向或反向极值时的束斑中心位置）。

图 2 为 197 Hz & 199 Hz 频率条件下绘制 1 s 内扫描轨迹的拆分示意图。可以看到，在四等分的时间段内，以拐点为边界的扫描路径覆盖区域均可以近似视为梯形。这里选取时长 1 s 是因为当扫描频率为整数时，1 s 后束斑的位置和速度方向均恢复至初始状态，为一个周期。

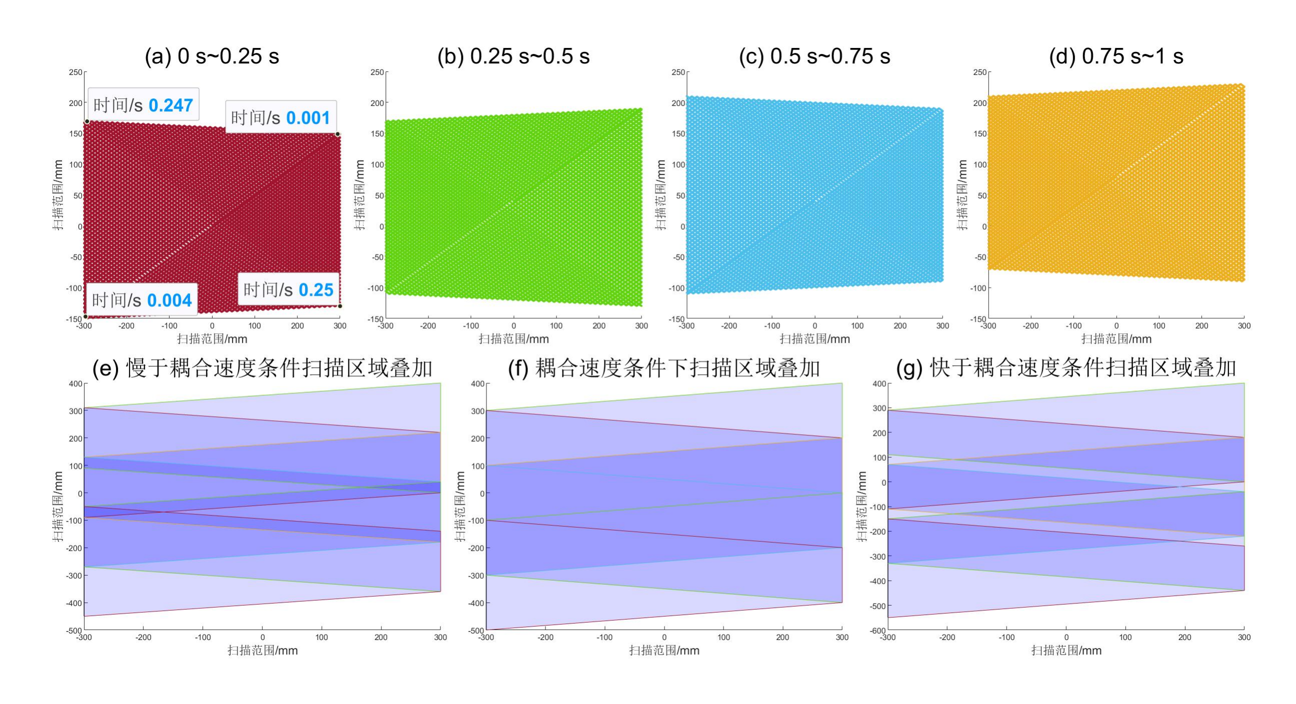


图 2 传动辐照时：(a)-(d)扫描轨迹拆分；(e)-(g)扫描区域叠加方式示意图

0 s 到 0.25 s 和 0.5 s 到 0.75 s 时，上边界的各个拐点从右向左依次出现，下边界拐点从左向右依次出现，当膜以匀速传动方式进行辐照时，这两段时间的扫描路径整体为短边在右的梯形；0.25 s 到 0.5 s 和 0.75 s 到 1 s 时则相反，故扫描路径为短边在左的梯形。设 1 s 内薄膜的传动距离为 s，由于类李萨如图形的性质，扫描路径拆分的梯形短边长为 $A_y - s/4$，长边长为 $A_y+s/4$。实际的辐照区域是由大量该尺寸的梯形叠加而成的，叠加方式如图 2(e)-(g)所示。如果要达成图 2(f)的扫描区域叠加形式，保证传动辐照达到最理想的均匀性，就要求每一个梯形的腰和另一个梯形的腰重合，也就是上下底边长为 $s/2$ 的整数倍，第 n 个辐照区域应相当于第 n-2 个辐照区域向下平移 $s/2$：

$$A_y - \frac{s}{4} = \frac{ns}{2} \tag{11}$$

$$s = \frac{4A_y}{2n+1} \tag{12}$$

满足上述条件的速度即称为耦合速度。对于 $A_y = 300$ mm 的情况，s 可以取得的整数值恰好有 400 mm，也就是 $v = 400$ mm/s。除此之外还有 240 mm/s 和 80 mm/s，对应的 n 的值分别为 1、2、7。当传动速度恰好为耦合速度时，梯形之间耦合，可以得到均匀的辐照结果。而偏离耦合速度时，传动辐照的注量分布将出现折线形条纹：传动略小于耦合速度时，梯形互相接近，辐照区域出现交叠，折线形条纹注

量高于其它区域；传动速度略大于耦合速度时，梯形互相远离，辐照区域出现空隙，折线形条纹注量低于其它区域。这与图 1(e)-(g)的模拟结果相吻合。当梯形重新移动到可以耦合的位置时，便会过渡到下一个耦合速度。例如，$n = 1$ 时对应的传动速度为 400 mm/s，减慢传动速度将会产生交叠区域。速度足够慢时便过渡到了下一个较慢的耦合速度，即 $n = 2$ 对应的传动速度 240 mm/s。同理，加快传动速度产生空隙，速度足够快时便过渡到了下一个较快的耦合速度，即 $n = 0$ 对应的传动速度 1200 mm/s。

式(12)得到的耦合速度仅对于可以将每个周期的扫描路径分为四个梯形的情况下成立。对于频率差为 2 Hz 的其它整数频率组合条件下 1 s 内的扫描路径，通过计算可以发现它和 197 Hz & 199 Hz 频率组合相同，均可分为四个梯形；对于频率差为 f' 的其它整数频率组合，则可以分为 $2f'$ 个梯形。因此，整数频率组合时的耦合速度条件应为：

$$v = \frac{2f' A_y}{2n+1} \tag{13}$$

f' 为两方向上扫描频率之差。假设需要辐照注量为 σ，长度为 L 的膜，而束流的流强为 C（每秒通过截面的粒子数），那么总共需要的扫描时间和传动速度为：

$$v = \frac{L}{t} = \frac{C}{\sigma A_x} \tag{14}$$

根据式(14)可以看出，在保证均匀性的情况下，辐照后膜的注量和传动速度成反比，和耦合速度对应的 n 值成正比。根据式(13)，式(14)，即可得到最接近目标注量的 n 值：

$$\frac{1}{2n+1} = \frac{C}{2f' A_x A_y \sigma} \tag{15}$$

实际应用中，需要通过调整 n 值对注量进行调整，即选取不同的耦合速度。例如，当膜所需辐照注量为 1×10^9 ions/cm^2，束流为 200 nA 的 Xe^{27+} 离子束时，使用 197 Hz & 199 Hz 的扫描频率组合，600 mm ×300 mm 的扫描范围条件进行辐照，则此时两方向上扫描频率之差 $f' = 2$，最合适的传动速度为 $n = 63$ 对应的耦合速度 9.45 mm/s，此时的误差为-0.096%；若 f' 取较大值，如 $f' = 20$，则最合适的传动速度为 $n = 634$ 对应的耦合速度 9.46 mm/s，误差下降至-0.017%。f' 取较大值时 n 值也较大，$2n+1$ 随着 n 值变化的

程度也较低，可以做到更精细的控制。

然而需要指出的是，扫描频率之差过大也会影响辐照的均匀性。如图 3 为两方向上扫描频率之差对均匀性的影响，这里固定 y 方向上扫描频率为 199 Hz，x 方向上扫描频率为整数值。

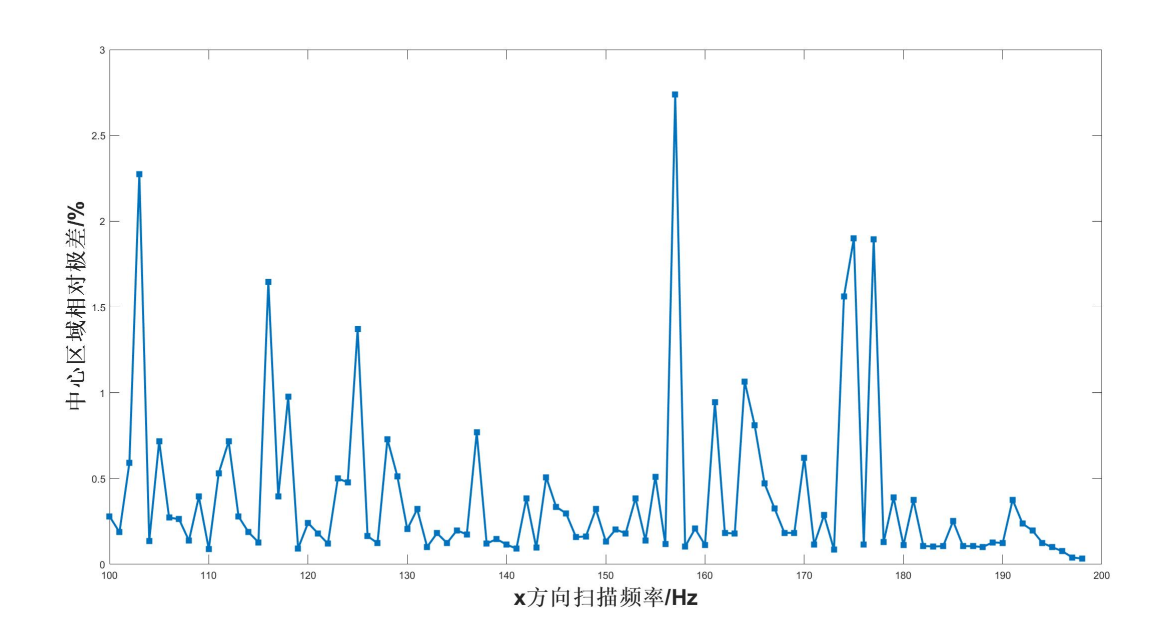


图 3 固定 y 方向上扫描频率为 199Hz 时，两方向上扫描频率之差对均匀性的影响

可以看到，当 x 方向上扫描频率高于 194 Hz 时，辐照的均匀性优于其余的所有频率组合，尤其是 197 Hz 和 198 Hz，其中心区域相对极差是 196 Hz 频率条件下的一半；x 方向扫描频率小于 196 Hz 时，扫描区域的注量相对极差最小也在 10%左右。由于模拟精度的限制，图 3 中在部分较低频率时取得的较高均匀性可能是由于采样点在特定的频率条件、扫描范围条件下排列为实际情况下不可能出现的规则图形所致。实际应用中，相比 A_x、A_y，扫描频率更容易精确调节。因此，为了最佳的均匀性和频率互质条件，x 方向扫描频率应尽量高，例如 197 Hz 或 198 Hz：根据式(13)、式(15)和图 3，扫描频率组合为 197 Hz & 199 Hz 时可以对应较高的传动速度和更精确的注量选取；扫描频率组合为 198 Hz & 199 Hz 时可以对应较低的传动速度和更高的注量。对于 y 方向扫描频率为其它数值的情况也类似，扫描频率之差过大也会影响辐照的均匀性，应该选取尽可能高的扫描频率和尽可能低的扫描频率之差，依旧以相差 1 Hz，2 Hz 为最佳。由于两方向上扫描频率相差为 2 Hz 时 n 值较大，可以做到更精细的注量控制，因此本文采用

相差 2 Hz 的频率条件。

3.3 一维扫描和二维扫描的适用情况

由于二维扫描传动辐照存在分立的耦合速度，在最大化均匀性，且假设束流强度不变的前提下，可选用的注量也是分立的，称为耦合注量。在实际应用中，可参考预期注量，根据式(14)计算得到最适合的预期传动速度，并通过式(15)计算选取最接近的耦合速度。但这一方法可能导致预期注量和实际的耦合注量之间存在不可忽视的误差。

根据式(13)、式(15)，在其它条件相同时注量与 $2n+1$ 成正比，各分立的注量的间隔将随着 n 值增大。对于比较快的传动速度，即 n 值较小的情况，会有可能出现期望注量与耦合注量差距较大的情况。例如例如强度为 200 nA 的 Xe^{27+}离子束，其对应的束流强度约为 4.63×10^{10} ions/s，如扫描范围为 600 mm ×300 mm 时，典型的期望注量对应的最接近的耦合注量及误差如表 1 所示：

表 1　常见辐照注量对应的最接近的耦合传动速度以及其误差

	期望注量(ions/cm²)	期望传动速度(mm/s)	耦合传动速度(mm/s)	实际注量(ions/cm²)	误差(a.u.)	对应 n 值
1	1×10^7	945.8	1200.0	7.882×10^6	-21.2%	0
2	1×10^8	94.58	92.310	1.025×10^8	-2.46%	6
3	1×10^9	9.458	9.4490	1.001×10^9	0.09%	63

表注：以上均为 200 nA 的 Xe^{27+}离子束辐照

可见，当期望注量为 1×10^7 ions/cm² 时，由于期望注量过低，只能选取最快的耦合传动速度 1200 mm/s，因此误差超过 20%。而期望注量为 1×10^8 ions/cm² 时，期望传动速度下降为 94.58 mm/s，对应 n 值较大，可以选取与期望传动传动速度接近的耦合传动速度；当期望注量达到 1×10^9 ions/cm² 时，对应 n 值更大，可选取的耦合传动速度将非常接近期望传动速度，理论上可以获得良好的辐照效果。

总体而言，其它条件不变时，期望注量越高，对应的传动速度越低，分立的各个耦合速度之间越接近，产生的误差上限也越小。目前重离子微孔膜的应用所需注量 σ 通常在 1×10^5~1×10^{10} ions/cm² 范围内，对于预期注较低的重离子微孔膜，更加适合使用一维扫描，即目前近代物理研究所 TR-6 终端（面向 1×10^5~1×10^7 ions/cm² 注量膜的辐照）所采用的扫描方式。

一维扫描仅在 x 方向上进行扫描，同时通过匀速传动使束流均匀覆盖在整张膜上，因此一维传动辐照的路径和三角波图像相同，由两组平行且等距的线段组成。在扫描频率足够时，平行线段之间距离为 v/f，当该距离小于束斑半高宽 d 时，辐照可以达到均匀。对于 10 mm 的束斑半高宽和 200 Hz 的最高扫描频率，保证均匀的最大传动速度为 2000 mm/s。

一维扫描的路径中，平行线间隔为 v/f，对比式(7)、式(8)可以发现在传动速度相同的情况下一维扫描的平行线间距远远小于二维扫描，也就是说理想情况下一维扫描的辐照均匀性优于二维扫描。但实际情况中，由于束流强度变化，束斑形状不稳定等原因，一维扫描将比二维扫描受到更多的干扰，因此需要进一步讨论。

3.4 束斑大小对扫描均匀性的影响

对于静止辐照，束斑大小对扫描结果均匀性的影响如 3.1 节所述，束斑越大辐照结果越容易达到均匀。对于传动辐照，则应重新讨论。我们取传动速度为 400 mm/s、240 mm/s 和 80 mm/s，束斑分布为半高宽 5 mm、10 mm 和 20mm 的高斯分布，讨论一维扫描和扫描频率之差为 2 Hz 的二维扫描两种扫描方式下，所需的最小的频率和频率组合，其结果如表 2 所示：

表 2　不同传动速度和束斑尺寸下一维和扫描频率之差为 2 Hz 的二维扫描达成 5%均匀性所需的最小频率（组合）

	传动速度	束斑 5%高半径 5 mm	束斑 5%高半径 10 mm	束斑 5%高半径 20 mm
一维扫描	400 mm/s	64 Hz	32 Hz	16 Hz
	240 mm/s	39 Hz	11 Hz	10 Hz
	80 mm/s	13 Hz	7 Hz	4 Hz
相差 2 Hz 二维扫描	400 mm/s	157 Hz&159 Hz	77 Hz&79 Hz	45 Hz&47 Hz
	240 mm/s	93 Hz&95 Hz	53 Hz&55 Hz	29 Hz&31 Hz
	80 mm/s	37 Hz&39 Hz	11 Hz&13 Hz	7 Hz&9 Hz

可以看到，对于传动辐照，仍旧是束斑尺寸越大，保持扫描均匀性所需的频率越低，越容易达成均匀；同时，对于三种束斑尺寸，传动速度越慢，所需的频率越低；传动速度和束斑尺寸条件一致时，一维扫描所需的频率低于二维扫描。

3.5 非理想束斑

先前假设束斑内的注量的分布为严格的高斯分布。但实际情况的束斑不可能为理想束斑，甚至会出现比较大的偏差。一些常见的非理想束斑的形状包括双中心分布、三角形分布和椭圆形分布等。为模拟这些情况，可以在模拟中将理想束斑分布 $g(x,y)$替换为图 4 所示的非理想束斑分布 $g'(x,y)$，以 mm 为单位，其表达式分别为：

1）双中心分布

$$g'(x,y) = e^{-\frac{3}{100}(x^2+y^2)-\frac{12}{100}((x+5)^2+(y+5)^2)} \tag{16}$$

2）三角形分布

$$g'(x,y) = e^{-\frac{3}{100}x^2-\frac{27}{400}e^{\frac{x}{10}}\cdot y^2} \tag{17}$$

3）椭圆分布

$$g'(x,y) = e^{-\frac{x^2}{75}-\frac{29}{400}y^2} \tag{18}$$

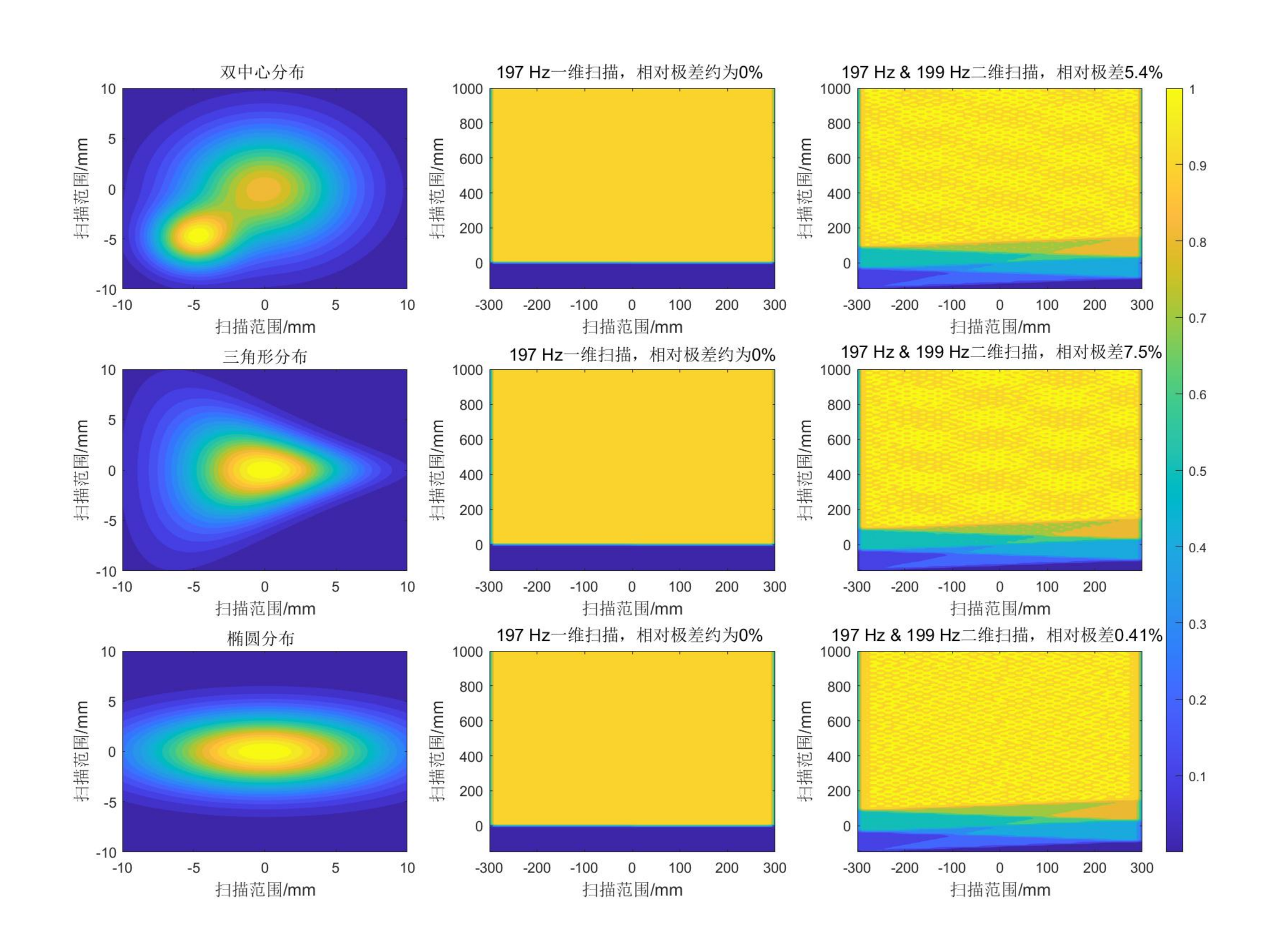


图 4 非高斯分布束斑形状及其辐照结果

图 4 为利用该分布计算 400 mm/s 匀速传动条件下，197 Hz 频率条件一维扫描和 197 Hz & 199 Hz 频率条件二维扫描下三种非理想束斑的辐照结果。将结果与图 2 对比，可以看到，一维扫描受非理想束斑的影响较小，整体仍然保持较好的均匀性；而二维扫描受不规则束斑的影响更大，在 197 Hz & 199 Hz 频率条件下其中心区域相对极差远超一维扫描，这是因为一维扫描中的平行线间距小于二维扫描。对于二维扫描，薄膜传动状态下非理想束斑的扫描依然需要满足耦合传动速度。总体上传动速度越慢，扫描频率越高均匀性越好。对于束斑形状不为高斯分布的情况，需要选取尽可能低的耦合速度和尽可能高且互质的频率来减轻其影响。

非理想束斑的尺寸仍然会对辐照结果的均匀性产生影响。参考图 4 所示的束斑，模拟束斑尺寸为式(16)~式(18)所描述的尺寸缩小一半、尺寸不变和尺寸扩大一倍三种情况下相差 2 Hz 的二维辐照保持 5%均匀性所需的最小频率组合，辐照范围为 600 mm×300 mm，传动速度选为 240 mm/s，可得结果如表 3 所

示：

表 3　不同束斑形状和尺寸下扫描频率之差为 2 Hz 的二维扫描达成 5%均匀性所需的最小频率（组合）

	束斑形状	尺寸缩小一半	尺寸不变	尺寸扩大一倍
相差 2 Hz 二维扫描	双中心分布	无法达到 5%，最低为 77 Hz&79 Hz 频率条件下的 38%	77 Hz&79 Hz	45 Hz&47 Hz
	三角形分布	无法达到 5%，最低为 101 Hz&103 Hz 频率条件下的 41%	77 Hz&79 Hz	45 Hz&47 Hz
	椭圆分布	无法达到 5%，最低为 101 Hz&103 Hz 频率条件下的 9.6%	53 Hz&55 Hz	29 Hz&31 Hz

在和表 2 中速度为 240 mm/s，扫描方式为相差 2 Hz 二维扫描的项目对比，可以看到束斑形状为双中心分布和三角形分布的影响较大，保持 5%均匀性的最低频率均上升了 20 Hz 左右。若束斑为椭圆分布，扫描结果受到的影响则较小，这是因为椭圆形在沿着平行路径的投影宽度仍然超过了扫描路径间隔，因此在束斑较大时几乎不受影响；在束斑较小时，三种非理想束斑均无法达到 5%的均匀度。

3.4 不稳定束流强度

由于离子源波动，以及离子加速需要经过的各种高压、磁铁单元的波动，会导致实际辐照中束流强度的波动，并对辐照的均匀性产生影响。由于束线结构复杂，实际情况下的离子辐照中束流强度的跳变接近随机跳变，如图 5(a)所示为模拟的束流强度随时间变化曲线和模拟中使用的随机束流强度，束流强度设定为每隔 1s 跳变，并且遵循正态分布。当预设的束流强度为 1，方差为 1/300 时，随机值大部分在平均值的±10%以内。

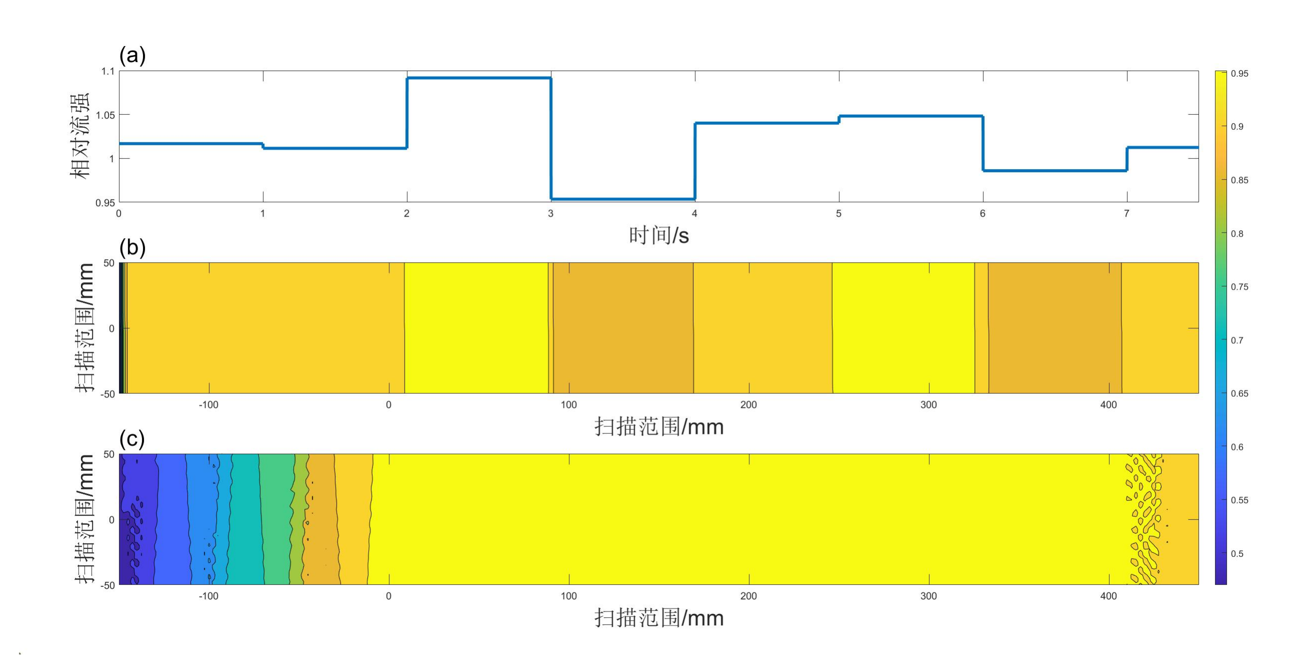


图 5 (a)随机跳变的束流强度，偏差在 10%以内；(b)一维扫描和(c)二维扫描在不同传动速度下束流强度随机跳变的辐照模拟结果

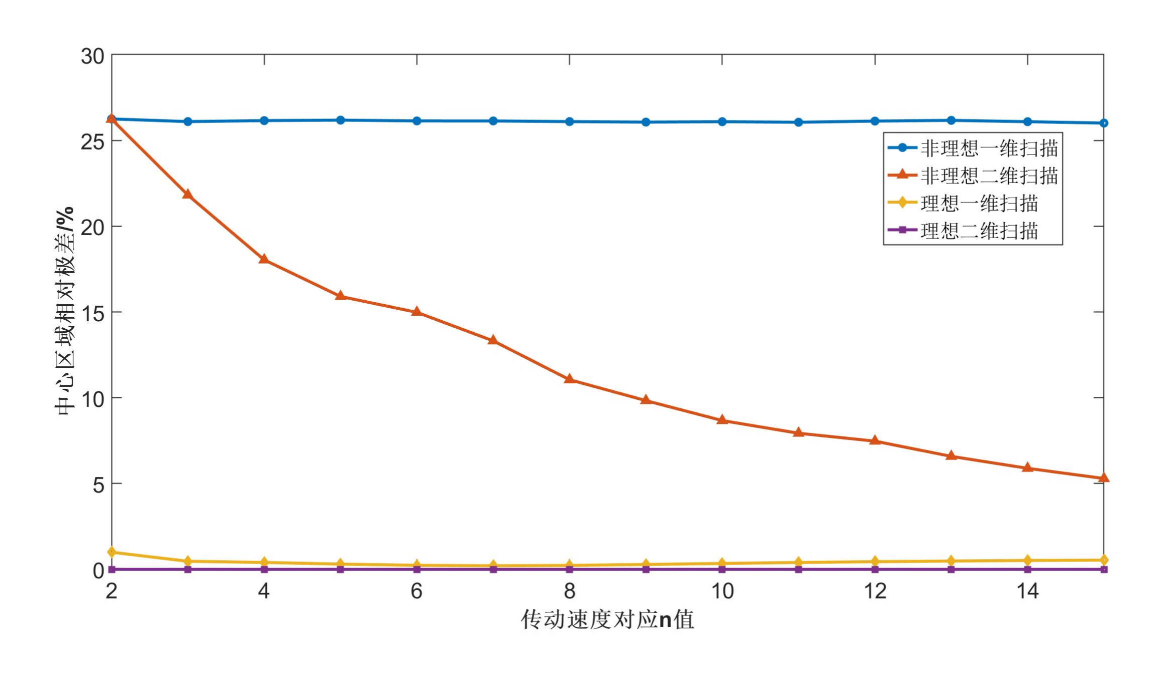


图 6 束流强度波动条件下非理想束斑和理想束斑对应的一维、二维扫描结果的中心区域相对极差

图 5(b)为计算得到的一维扫描传动辐照结果，图 5(c)则为二维扫描。可以看出，一维扫描结果有明显与束流波动吻合的条带状特征，而二维扫描则可以保持相对均匀。图 6 为束流强度波动条件下一维、二维扫描结果的中心区域相对极差。在理想条件下，一维扫描的均匀性始终优于二维扫描，但考虑束斑形状不为高斯分布以及束流强度随机跳变影响时，一维扫描的不均匀性始终维持在一个较高的值，而二维扫描在 n 值较大，或者说传动速度较低时的均匀性将得到提升，这是因为传动速度较慢的情况下膜的

注量会上升，随机性的影响将得到抵消。一维扫描对于束流强度跳变的适应性明显弱于二维扫描，这是因为二维扫描中同一个空间位点会经历多次扫描，注量是多次扫描束斑的叠加，而一维扫描没有多次叠加，注量集中在一个条带内。

在实际的重离子微孔膜辐照中，可以通过束流强度波动情况和所需注量等判断具体采用的磁扫描方式：

（1）若束流强度波动小于可容忍的误差，且需求注量较低，则推荐采用一维扫描的方式；

（2）若束流强度波动大于可容忍的误差，且需求注量较高，则推荐采用二维扫描的方式，尽可能选取较低的耦合速度、较高的扫描频率和较低扫描频率之差来提高均匀性；

（3）若束流强度波动小于可容忍的误差，且需求注量较高，则建议根据模拟结果，选取均匀度较佳的方案。

4 总结

本研究开发了一种基于路径积分的方法模拟快重离子辐照的均匀性。该方法可以模拟静止靶辐照以及传动靶辐照的结果，且可以评估束流强度波动和束斑形状等因素对辐照结果的影响。本文通过模拟计算得到如下结论和建议：

1. 在聚焦束斑具备一定对称性的条件下，对于静止靶辐照和传动靶的一维扫描辐照，束斑尺寸越大，扫描频率越高，辐照结果越均匀；

2. 对于传动靶的二维扫描辐照，应尽量选取高且互质的两方向扫描频率，且存在一系列分立的耦合速度使整体的辐照均匀性达到理想值。该系列耦合速度由 y 方向扫描幅度和两方向上扫描频率之差决定；

3. 由于二维扫描存在耦合速度，对期望注量较低，传动速度较快的情况，应考虑使用一维扫描的方式。对于实际辐照中束斑不为高斯分布以及束流强度不稳定的情况，应根据具体情况，如束流波动情况，所需注量大小等决定辐照方式和参数，本文也给出了相应建议并提供了模拟的模型。

参考文献（References）

[1] ENSINGER W, VOLZ K H, CHBAUER T. Three-dimensional dose uniformity of plasma immersion ion implantation shown with the example of macro-trenches[J]. Surf Coat Tech, 1999, 120: 347. doi: 10.1016/S0257-8972(99)00462-4

[2] OGOYSKI A I, SOMEYA T, SASAKI T, et al. Heavy ion beam irradiation non-uniformity in inertial fusion[J]. Phys Lett A, 2003, 315(5): 372. doi: 10.1016/S0375-9601(03)01042-9

[3] FARR J B, MASCIA A E, HSI W C, et al. Clinical characterization of a proton beam continuous uniform scanning system with dose layer stacking[J]. Med Phys, 2008, 35(11): 4945. doi: 10.1118/1.2982248

[4] ZHAO J. Improvement of MMW irradiation uniformity in culture dishes for experiments on MMW biological effects[J]. Microw Opt Techn Let, 2010, 40(3): 258. doi: 10.1002/mop.11346

[5] REN C L, YANG Y, LI Y, et al. Sample spinning to mitigate polarization artifact and interstitial-vacancy imbalance in ion-beam irradiation[J]. Npj Comput Mater, 2020, 6(1): 189. doi: 10.1038/s41524-020-00438-9

[6] DAVIS C A. A simple model for the formation of compressive stress in thin films by ion bombardment[J]. Thin Solid Films, 1993, 226(1): 30. doi: 10.1016/0040-6090(93)90201-Y

[7] SARAF L V, PATIL S I, OGALE S B, et al. Synthesis of Nanophase TiO2 by Ion Beam Sputtering and Cold Condensation Technique[J]. Int J Mod Phys B, 1998, 12(25): 2635. doi: 10.1142/S0217979298001538

[8] KAWATA S, NOGUCHI K, SUZUKI T, et al. Uniformity of fuel target implosion in heavy ion fusion. Laser and Particle Beams[J]. Laser Part Beams, 2015, 33(4), 591. doi: 10.1017/s026303461500066x

[9] WEN X, LI Q, ZHOU G, et al. A theoretical study on the influence of the homogeneity of heavy－ion irradiation field on the survival fraction of cells[J]. Jornal of Radiation Research and Radiation Processing, 2001, 19(2): 122-(in Chinese). doi: 10.3969/j.issn.1000-3436.2001.02.007.

(温小琼,李强,周光明,等. 重离子照射野均匀度对细胞存活率影响的理论研究[J]. 辐射研究与辐射工艺学报, 2001, 19(2): 122. doi: 10.3969/j.issn.1000-3436.2001.02.007)

[10] GOODHEAD D T, MUNSON R J, Thacker J, et al. Mutation and inactivation of cultured mammalian cells exposed to beams of accelerated heavy ions[J]. Int J Radiat Biol, 1980, 37(2): 135. doi:10.1080/09553008014550201

[11] LI Y, ZHAO Y, WANG H, et al. The application of nanofiltration membrane for recovering lithium from salt lake brine[J]. Desalination, 2019, 468: 114081. doi: 10.1016/j.desal.2019.114081

[12] MIRSAIDOV U M, WANG D, TIMP W, et al. Molecular diagnostics for personal medicine using a nanopore[J]. Wires Nanomed Nanobi, 2010, 2: 367. doi: 10.1002/wnan.86

[13] 吕双宝. 锥孔纳米结构吸光特性与应用研究[D]. 兰州大学, 2022

[14] KADIC M, MILTON G W, VAN HECKE M, et al. 3D metamaterials[J]. Nat Rev Phys, 2019, 1: 198. doi: 10.1038/s42254-018-0018-y

[15] CHENG H, ZHU X, CHENG X. et al. Mechanical metamaterials made of freestanding quasi-BCC nanolattices of gold and copper with ultra-high energy absorption capacity[J]. Nat Commun, 2023, 14: 1243. doi: 10.1038/s41467-023-36965-4

[16] LI H, QIU C, REN S, et al. Na^+-gated water-conducting nanochannels for boosting CO_2 conversion to liquid fuels[J]. Science, 2020, 367(6478): 667. doi: 10.1126/science.aaz6053

[17] WANG X, SHI B, YANG H, et al. Assembling covalent organic framework membranes with superior ion exchange capacity[J]. Nat Commun, 2022, 13: 1020. doi: 10.1038/s41467-022-28643-8

[18] TAN R, WANG A, MALPASS-EVANS R, et al. Hydrophilic microporous membranes for selective ion separation and flow-battery energy storage[J]. Nat Mater, 2020, 2: 19. doi: 10.1038/s41563-019-0536-8

[19] SEGRE E, MORRISON P, FELD B T. Experimental nuclear physics[M]. Wiley, 1953: 282.

[20] KOEHLER A M, SCHNEIDER R J, SISTERSON J M. Flattening of proton dose distributions for large-field radiotherapy[J]. Med Phys, 1977, 4(4): 297. doi: 10.1118/1.594317

[21] YOSHIDA M, ASANO M, SUWA T, et al. Creation of thermo-responsive ion-track membranes[J]. Adv Mater, 2010, 9(9): 757. doi: 10.1002/adma.19970090917

[22] TAMADA M, ASANO M, SPOHR R, et al. Preparation of hydrolyzed ph responsive ion track membrane.[J] Macromol Rapid Comm, 1995, 16(1): 47. doi: 10.1002/marc.1995.030160109

[23] KERBIRIOU X, COSTANTINI J M, SAUZAY M, et al. Amorphization and dynamic annealing of hexagonal SiC upon heavy-ion irradiation: Effects on swelling and mechanical properties[J]. J Appl Phys, 2009, 105(7): 73513. doi: 10.1063/1.3103771

[24] RANA S, ZEIDAN O, RAMIREZ E, et al. Measurements of lateral penumbra for uniform scanning proton beams under various beam delivery conditions and comparison to the XiO treatment planning system[J]. Med Phys, 2013, 40(9): 91708. doi: 10.1118/1.4818283

[25] ZENKLUSEN S M, PEDRONI E, MEER D, et al. Preliminary investigations for the option to use fast uniform scanning with compensators on a gantry designed for IMPT[J]. Med Phys, 2011, 38(9): 5208. doi: 10.1118/1.3626483

[26] ZHENG Y, RAMIREZ E, MASCIA A, et al. Commissioning of output factors for uniform scanning proton beams[J]. Med Phys, 2011, 38(4): 2299. doi: 10.1118/1.3569581

[27] DIFFEY B L, HARRINGATON T R, CHALLONER A. A comparison of the anatomical uniformity of irradiation in two different photochemotherapy units[J]. Brit J Dermatol, 1978, 99(4): 361. doi: 10.1111/j.1365-2133.1978.tb06170.x

[28] NATSUAKI N, OHYU K, TOKUYAMA T. Spatial dose uniformity monitor for electrically scanned ion beam[J]. Rev Sci Instrum, 1978, 49(9): 1300. doi: 10.1063/1.1135572

[29] ANFEROV V A. Scan pattern optimization for uniform proton beam scanning[J]. Med Phys, 2009, 36(8): 3560-3567. doi: 10.1118/1.3158731

[30] HABERER T, BECHER W, SCHARDT D, et al. Magnetic scanning system for heavy ion therapy[J]. Nucl Instrum Meth A, 1993, 330(1-2): 296. doi: 10.1016/0168-9002(93)91335-K

[31] RENNER T R, CHU W T. Wobbler facility for biomedical experiments[J]. Med Phys, 1987, 32(5): 825-834. doi: 10.1118/1.596009

[32] CHU W T, LUDEWIGT B A, RENNER T R. Instrumentation for treatment of cancer using proton and light-ion beams[J]. Rev Sci Instrum, 1993, 64(8): 2055. doi: 10.1063/1.1143946

Simulation of ion irradiation uniformity for large-scale ion track membrane

XIAO Minghao[1,2,3], WANG Wentao[1,2,3], LI Yunjie[1,2,3], XUE Haizhou[1,2,3,†]

1. Institute of Modern Physics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China

2. School of Nuclear Science and Technology, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

3. Advanced Energy Science and Technology Guangdong Laboratory, Huizhou 516000, Guangdong, China

Abstract: Heavy ion irradiation has a wide range of applications in fields such as semiconductor, medical, material and biological, etc., and the uniformity of irradiation is the key index for many related applications, such as ion track membranes, whose uniformity of microporous distribution is directly determined by the irradiation. Ion track membranes have excellent characteristics such as controllable pore density and pore size and straight pore channels, which have good application prospects. At present, equipment for rapid production of large-area ion track membranes, such as the TR-3 terminal of the Heavy Ion Research Facility in Lanzhou (HIRFL), is already under construction, which realizes high-efficiency continuous production through continuous transmission of wide-area films and simultaneous heavy-ion irradiation. How to guarantee the uniformity of ion irradiation for wide-format, continuously moving films has become an urgent research issue. In this paper, a simulation program based on path integral is developed to simulate the irradiation injection distribution of ion track membrane. The results show that for two-dimensional magnetic scanning, there exist a series of discrete coupling velocities to make the irradiation results uniform for transmission irradiation at constant speed. Deviation from the coupling velocities may lead to periodic ups and downs in ion fluence distribution. It is also found that one-dimensional scanning is more resilient to non-ideal beam spot shapes, while two-dimensional scanning is more resilient to beam intensity variation. When the required fluence error and the provided beam intensity are determined, the formula provided in this paper can be used to calculate the coupling transmission speed required for the irradiation and to give recommendations on whether one-dimensional scanning or two-dimensional scanning is more applicable at this time. In this study, the issue of uniformity of heavy ion irradiation is investigated using simulation methods, and the results can provide a reference for related research and production.

Key words: ion track membrane; ion irradiation; irradiation uniformity; magnetic scanning

Received date: 2023-07-18; **Revised date:** 2023-09-19

Foundation item: National Natural Science Foundation of China(E311171G); Program for Talents in Chinese Academy of Science(E128171Y); Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences(XDC10020202)

[†]**Corresponding author:** XUE Haizhou, E-mail: haizhouxue@impcas.ac.cn.